



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

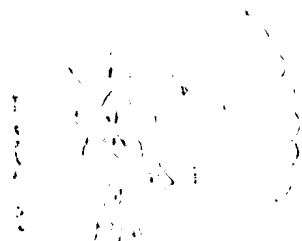
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年    4 月 1 5 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 1 0 9 9 9 1  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 1 0 9 9 9 1 ]

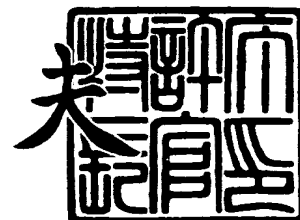
出    願        人            N E C ト ー キ ン 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):



2 0 0 4 年    3 月    1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 4 - 3 0 1 4 9 0 9



【書類名】 特許願

【整理番号】 TK150208

【提出日】 平成15年 4月15日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

    【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区郡山六丁目 7 番 1 号 エヌイーシー  
                                トーキン株式会社内

    【氏名】 水越 崇

【発明者】

    【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区郡山六丁目 7 番 1 号 エヌイーシー  
                                トーキン株式会社内

    【氏名】 西山 利彦

【発明者】

    【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区郡山六丁目 7 番 1 号 エヌイーシー  
                                トーキン株式会社内

    【氏名】 清水 邦彦

【発明者】

    【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区郡山六丁目 7 番 1 号 エヌイーシー  
                                トーキン株式会社内

    【氏名】 佐々木 正幸

【特許出願人】

    【識別番号】 000134257

    【氏名又は名称】 エヌイーシートーキン株式会社

    【代表者】 羽田 祐一

    【電話番号】 022-308-0011

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 000848

    【納付金額】 21,000円



【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要



【書類名】 明細書

【発明の名称】 固体高分子型燃料電池セル及び燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子電解質膜と該固体高分子電解質膜の両面に配置された一対の電極からなる電解質膜電極接合体と、該電解質膜電極接合体の両面に圧接された状態で配置された導電性線材と、該導電性線材を固定する枠状の支持体を有することを特徴とする、固体高分子型燃料電池セル。

【請求項 2】 前記電解質膜電極接合体の両面に配置された前記導電性線材のそれぞれが、同一の支持体に固定されていることを特徴とする、請求項 1 に記載の固体高分子型燃料電池セル。

【請求項 3】 前記導電性線材は、集電体として機能することを特徴とする、請求項 1 または請求項 2 に記載の固体高分子型燃料電池セル。

【請求項 4】 前記導電性線材は、金属からなることを特徴とする、請求項 1 ないし請求項 3 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池セル。

【請求項 5】 前記導電性線材は、金めっきが施されていることを特徴とする、請求項 4 に記載の固体高分子型燃料電池セル。

【請求項 6】 請求項 1 ないし請求項 5 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池セルを構成要素とすることを特徴とする燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子型燃料電池セルと、それを構成要素とする燃料電池に関するもので、さらに詳しくは、固体高分子型燃料電池セルを構成する電解質膜電極接合体の固定方法と、集電体の構造に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は、水の電気分解の逆の反応を利用するもので、従来の発電方法に比較して高い効率で電気エネルギーを取り出すことが可能なので、省資源などの観点から、様々な技術開発がなされ、実用化されつつある。

**【0003】**

燃料電池の基本的な構造は、水素イオンを通す電解質膜、電解質膜の両側に配置された燃料極と空気極からなる電極、電極から電気を取り出す集電体、電極への燃料や空気の供給路を仕切るとともに、セル間を電氣的に接続するセパレータからなる。

**【0004】**

そして、電解質の種類により熔融炭酸塩型、固体酸化物型、リン酸型、固体高分子型に分類される。これらの用途を決定する特性として作動温度があり、固体高分子型は、約 80℃ という作動温度の低さのために特に注目され、モバイル機器用などにも使用できる可能性が高い。

**【0005】**

図 8 は、基本的な、従来の固体高分子型燃料電池の構造を示す斜視図である。図 8 において、1 は固体高分子電解質膜、2 は電極部であり、固体高分子電解質膜 1 を両面から挟んで接合され、電解質膜電極接合体 (Membrane Electrode Assembly: 以下、MEA と記す) 3 を構成する。MEA における電極部 2 は、触媒層、拡散層を積層したもので、燃料 (水素)、空気 (酸素) を供給することにより、電気化学反応が起こり、電力が得られる。

**【0006】**

また、9 はセパレータであり、MEA に接する側の全面に、溝 10 が設けられている。セパレータ 9 は、MEA を両側から挟み、圧力を加えて固定し、反応物の供給、生成物の排出、集電の機能を備えている。材質としては、導電性が必要のため、グラファイトやステンレスが用いられ、溝 10 と対になって形成されている凸部 11 は、MEA を加圧する機能を有し、均一に加圧するために、様々な形状が検討されている。

**【0007】**

溝 10 と凸部 11 の形状の検討が必要な理由は、MEA とセパレータが接する界面で、MEA に過度の圧力が集中する部分が生じると、その部分への反応物の供給や、排出すべき生成物の拡散を妨げるからである。反面、セパレータの構造を複雑化することは、製造コストを増加させる結果となる。

**【0008】**

そして、セパレータの構造を検討した例が、特許文献1に開示されている。ここに開示されているセパレータは、スリットを設けた金属板を、金属の平板へ当接させた構造であり、平板に溝加工を施すよりも、加工が容易であり、熱応力への対策もなされている。しかしながら、前記の課題に対しては、十分に対処できるものではない。

**【0009】****【特許文献1】**

特開 2002-343376号公報

**【0010】****【発明が解決しようとする課題】**

従って、本発明の課題は、MEAに均一に圧接され、反応物の供給や生成物の排出が円滑に進行し、燃料電池全体として特性を低下させないセパレータを備えた、固体高分子型燃料電池セルと、それを構成要素として備えた燃料電池を提供することにある。

**【0011】****【課題を解決するための手段】**

本発明は、前記課題を解決するため、従来用いられていた板状のセパレータとは、まったく異なる構造で、セパレータの機能を備えた部材を検討した結果、なされたものである。

**【0012】**

即ち、本発明は、固体高分子電解質膜と該固体高分子電解質膜の両面に配置された一対の電極からなる電解質膜電極接合体と、該電解質膜電極接合体の両面に圧接された状態で配置された導電性線材と該導電性線材を固定する枠状の支持体を有することを特徴とする、固体高分子型燃料電池セルである。

**【0013】**

また、本発明は、前記電解質膜電極接合体の両面に配置された前記導電性線材のそれぞれが、同一の支持体に固定されていることを特徴とする、前記の固体高分子型燃料電池セルである。

**【0014】**

また、本発明は、前記導電性線材が、集電体として機能することを特徴とする、前記の固体高分子型燃料電池セルである。

**【0015】**

また、本発明は、前記導電性線材が、金属からなることを特徴とする、前記の固体高分子型燃料電池セルである。

**【0016】**

また、本発明は、前記導電性線材が、金めっきが施されていることを特徴とする、前記の固体高分子型燃料電池セルである。

**【0017】**

また、本発明は、前記の固体高分子型燃料電池セルを構成要素とすることを特徴とする燃料電池である。

**【0018】**

本発明による固体高分子型燃料電池セルは、導電性線材が従来のセパレータの凸部として機能するが、MEAとは面接触にならないので、MEAを加圧する面積が必要以上に広くなならない。このため、電極への反応物の供給と、電極からの排出物の拡散が円滑に行われる。

**【0019】**

また、導電性線材を用いるので、別途に集電体として機能する部材を設ける必要がなく、固体高分子型燃料電池セルの構造簡略化に寄与することができる。さらに、導電性線材として、金属を用いれば、高強度を確保できるとともに、めっきが容易なので、表面に金めっきを施すことにより、耐腐食性の向上も可能である。

**【0020】****【発明の実施の形態】**

次に、具体的な例を図示しながら、本発明の実施の形態について説明する。

**【0021】**

図1は、本発明の実施の形態に係る、固体高分子型燃料電池セルにおける、MEA3、支持体4、導電性線材5の構成を示す図で、図1(a)は斜視図、図1



(b) は一部を拡大した平面図、図 1 (c) は側面の一部を拡大した断面図である。図 1 (a) では、表示の都合上、導電性線材 5 の一部のみを示している。また、図 2 は、図 1 における支持体 4 への導電性線材 5 の固定方法を示した拡大透視図である。

#### 【0022】

図 1 に示したように、支持体 4 は四角形の枠形状であり、導電性線材 5 の外径よりも大きな径を有する貫通孔が、一定の間隔で設けられている。導電性線材 5 は、この貫通孔に通された後に、対向する側の辺まで引き出され、対抗する辺に同様に設けられた貫通孔に通され、隣接する貫通孔に通されて同一の側に引き出されるという操作の繰り返しにより、対向する辺の間に一定間隔で張られる。

#### 【0023】

この例では、MEA 3 を、同一の支持体 4 の図 1 における縦方向に張った導電性線材と横方向に張った導電性線材の間に配置している。このような構成とすることで、1 枚の MEA について、支持体 4 の必要数個数は 1 となる。

#### 【0024】

図 3 は、図 1 に示した、MEA 3、支持体 4、導電性線材 5 を組み立てた部材を用いて、固体高分子型燃料電池セルを構成する例を示す斜視図である。図 3 において、6 はシール材、7 は燃料極においては燃料または水素、空気極においては空気または酸素を供給するためのタンクであり、8 は反応物の供給または生成物の排出を行うための供給排出口である。このような固体高分子型燃料電池セルを複数個積層し、端子などの必要な部品を取り付けることで、高分子型燃料電池が得られる。

#### 【0025】

図 4 は、本発明の実施の形態で、別個の支持体 4 に、それぞれ導電性線材 5 を固定した例を示す斜視図である。この場合は、支持体 4 の導電性線材 5 が張られた側を対向させた状態で、間に MEA 3 を配置し、たとえばボルト、ナットのような固定用部材を用いて、導電性線材 5 を MEA 3 に圧接する。ここに示した例では、導電性線材 5 を、支持体の一方向にのみ張った例を示したが、縦横両方向に導電性線材 5 を張って網目状にしてもよい。なお、この場合も表示の都合上、





導電性線材 5 の一部のみを示している。

#### 【0026】

次に、具体的な実施例に基づき、本発明について、さらに詳しく説明する。

#### 【0027】

(実施例 1)

まず、電極の作製方法について説明する。カーボン繊維の不織布を基材として用い、ポリテトラフルオロエチレン（以下、PTFEと記す）を分散させた液に、ケッチェンブラックを混合したスラリーを、カーボン繊維の不織布に塗布、乾燥、焼成し拡散層を得た。ここで用いた PTFE は撥水剤として機能するものである。

#### 【0028】

このようにして得た拡散層に、燃料極側には PtRu 担持カーボン触媒を、空気極側には Pt 担持カーボン触媒とスルホン基を導入したフッ素化ポリオレフィン溶液を混合したスラリーを塗布、乾燥することにより電極とした。固体高分子電解質膜としては、スルホン基を導入したフッ素化ポリオレフィンである、デュポン社製の Nafion 117（登録商標）を用いた。

#### 【0029】

これらの電極及び固体高分子電解質膜を積層して熱プレスを施し、MEAを得た。なお、大きさは電極部が 35 mm×35 mm であり、固体電解質膜が 55 mm×55 mm である。

#### 【0030】

また、本実施例の固体高分子型燃料電池セルでは、本発明の効果が最も顕著になると考えられる、メタノールと水との触媒層での直接反応による、ダイレクトメタノール型燃料電池セルとし、加圧しないで燃料と酸素をそれぞれ供給する方法を用いた。

#### 【0031】

また、支持体は、アクリル系の高分子材料からなり、外側の寸法が 55 mm×55 mm、内側の寸法が 40 mm×40 mm、厚さが 5 mm である。導電性線材を通すために内径 1 mm の貫通孔が一定間隔で設けてある。

**【0032】**

導電性線材には、外径が0.5mmのステンレス線を用いた。これらの材料や部材を図1に示したように組み立て、さらに図3に示したように、シール材6とタンク7を取り付け、固体高分子型燃料電池セルを得た。

**【0033】**

本実施例においては、図3に示したように、縦横に張った導電性線材を同一支持体の同一面側に固定し、縦横の導電性線材の間に、MEAを配置することで、部品数を減少することができるとともに、圧力をMEAに効率よく加えることができる。また、固体電解質膜は、支持体との間に隙間ができないようにオーバーラップされ、燃料と酸素が相互に漏れないようになっている。

**【0034】**

なお、ここでは、スチレン-ブタジエン系の合成ゴムをシール材として用い、接着剤を併用して密封したが、タンクにゴム質の材料を用い、シール材として機能させてもよい。電力の取り出しは、支持体のタンクとは反対の側に露出している導電性線材に、端子を取り付けて行い、放電特性を評価した。

**【0035】****(実施例2)**

導電性線材に金めっきを施した他は、実施例1と同様にして、固体高分子型燃料電池セルを得た。本実施例の固体高分子型燃料電池セルについても放電特性を評価した。

**【0036】****(実施例3)**

MEAと導電性線材との間の接触抵抗を低減するために、導電性線材とMEAとの間に金めっきを施したメッシュを介在させた他は、実施例2と同様にして、固体高分子型燃料電池セルを得た。本実施例の固体高分子型燃料電池セルについても放電特性を評価した。

**【0037】****(実施例4)**

実施例3で用いた、金めっきを施したステンレスメッシュの替りに、黒鉛製の

フェルトを、導電性線材とMEAとの間に介在させた他は、実施例2と同様にし、固体高分子型燃料電池セルを得た。本実施例の固体高分子型燃料電池セルについても放電特性を評価した。

#### 【0038】

##### (実施例5)

導電性線材を図4に示したように、別個の支持体へそれぞれ固定した。ここでは、導電性線材として実施例2に示したと同様に、外径が0.5mmで金めっきをほどこしたステンレス線を用いた。支持体の導電性線材を固定した側を対向させて、MEAを挟み、ボルト、ナットを用い、支持体の4隅で固定した他は、実施例2と同様にし、固体高分子型燃料電池セルを得た。本実施例の固体高分子型燃料電池セルについても放電特性を評価した。

#### 【0039】

##### (比較例)

比較に供するために、従来形状のステンレス製セパレータを用いた固体高分子型燃料電池セルを調製した。図7は、比較例に用いたセパレータの斜視図である。MEAについては、実施例1ないし実施例5に用いたものと同じ構成とした。そして、比較例の固体高分子型燃料電池セルについても放電特性を評価した。

#### 【0040】

図5は、実施例1ないし実施例5と比較例の放電特性をまとめて示した図である。また、表1は、実施例1ないし実施例5と比較例の、電流密度が $90\text{ mA/cm}^2$ における電圧の測定結果を示したものである。

#### 【0041】

【表 1】

	電圧 [mV]
実施例 1	175
実施例 2	182
実施例 3	190
実施例 4	191
実施例 5	100
比較例	110

## 【0042】

図 5 及び表 1 に示した結果によると、電流密度が  $90 \text{ mA/cm}^2$  における比較例の電圧が  $110 \text{ mV}$  であるのに対し、実施例 1 ないし実施例 4 は、すべてこの値を上回った。また、限界電流密度、即ち、電圧がほぼ 0 となる電流密度も、比較例では、 $100 \text{ mA/cm}^2$  程度であるが、実施例 1 ないし実施例 4 では、それ以上の大きな値を示した。

## 【0043】

このような電流密度の高い範囲での特性の向上は、MEA に均等に十分な圧力が加えられた状態で、反応物、即ち、燃料と酸素が十分に供給され、生成物が速やかに排出されたことによると解される。一方、実施例 5 は比較例とあまり差違の認められない特性を示し、図 4 のような燃料電池の構造では実施例 1 ないし実施例 4 で用いた構造と比較すると、MEA に対して十分な圧力を加えることができなかったためと解される。

## 【0044】

実施例 2 においては、導電性線材に金めっきを施すことで、導電性線材と MEA との間の接触抵抗が低減され、実施例 1 よりも優れた特性を発現した。また、実施例 3、実施例 4 においては、実施例 2 をさらに上回る特性が得られた。これは、導電性線材と MEA との間に、金めっきを施したメッシュや黒鉛製のフェルトを介在させることで、MEA と導電性線材が接しない部分を適度に加圧し、抵

抗が低減した結果、集電効率が向上したためと解される。

#### 【0045】

図6には、実施例1と実施例2における、 $25\text{ mA/cm}^2$ で放電した際の、電圧の経時変化を示す図である。この結果から、導電性線材に金めっきを施すことにより、導電性線材表面の腐蝕が防止され、長期間の使用における、導電性線材とMEAとの接触抵抗の増加による、電圧の低下が低減することが明らかである。

#### 【0046】

##### 【発明の効果】

以上に説明したように、本発明によれば、導電性線材をMEAに圧接させて固定することにより、MEAに均等に圧力を加えた状態で、燃料、酸素を効率よく供給でき、生成物も速やかに排出される、優れた特性を具備した固体高分子型燃料電池セルと、これを構成要素とする固体高分子型燃料電池を得ることができる。

#### 【0047】

また、従来の複雑な加工を伴うセパレータが不要なので、製造コスト低減にも寄与できる。さらに、前記実施例では、メタノールを直接反応させるダイレクトメタノール型燃料電池を取り上げたが、水素ガスを燃料として用いる、固体高分子型燃料電池に適用しても同様の効果が得られることは勿論である。

##### 【図面の簡単な説明】

#### 【図1】

本発明の実施の形態に係る、固体高分子型燃料電池セルにおける、MEA、支持体、導電性線材の構成を示す図。図1(a)は斜視図。図1(b)は一部を拡大した平面図。図1(c)は側面の一部を拡大した断面図。

#### 【図2】

支持体への導電性線材の固定方法を示した拡大透視図。

#### 【図3】

固体高分子型燃料電池セルを構成する例を示す斜視図。

#### 【図4】

別個の支持体に、それぞれ導電性線材を固定した例を示す斜視図。

【図 5】

実施例 1 ないし実施例 5 と比較例の放電特性をまとめて示した図。

【図 6】

実施例 1 と実施例 2 における、 $25\text{ mA/cm}^2$  で放電した際の、電圧の経時変化を示す図。

【図 7】

比較例に用いたセパレータの斜視図。

【図 8】

従来の固体高分子型燃料電池の構造を示す斜視図。

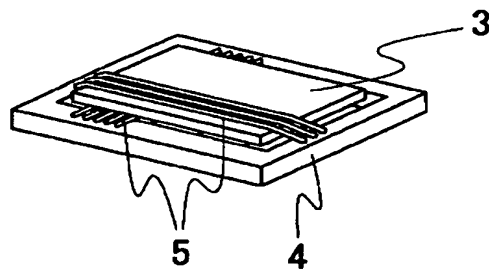
【符号の説明】

- 1 固体高分子電解質膜
- 2 電極部
- 3 電解質膜電極接合体(MEA)
- 4 支持体
- 5 導電性線材
- 6 シール材
- 7 タンク
- 8 供給排出口
- 9 セパレータ
- 10 溝
- 11 凸部

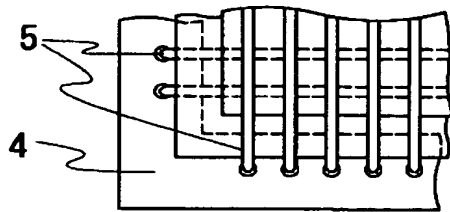
【書類名】 図面

【図 1】

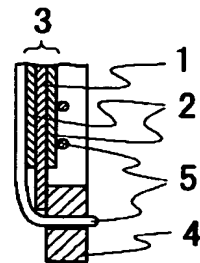
(a)



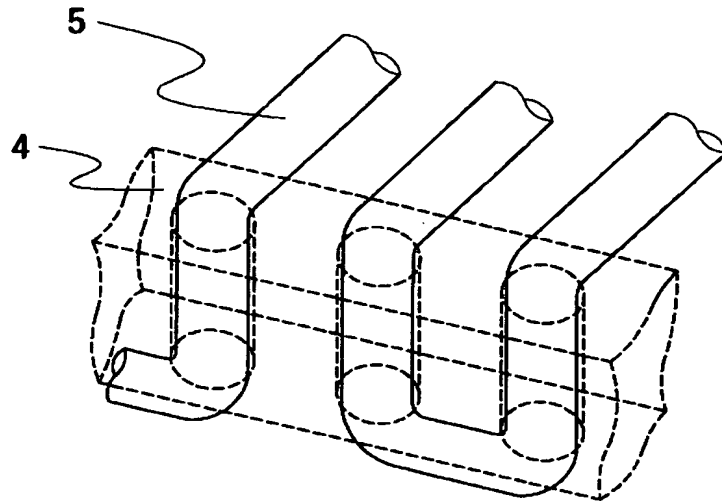
(b)



(c)

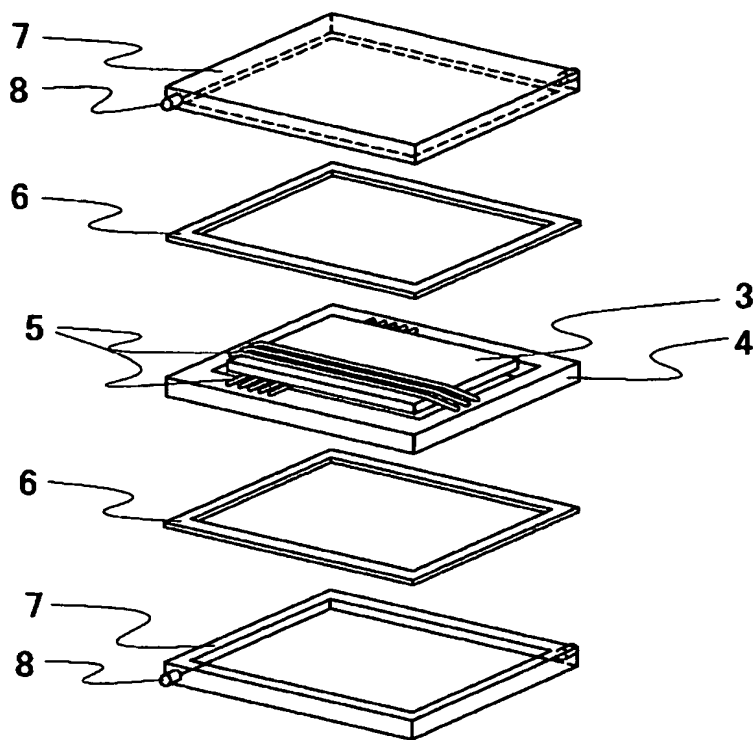


【図 2】

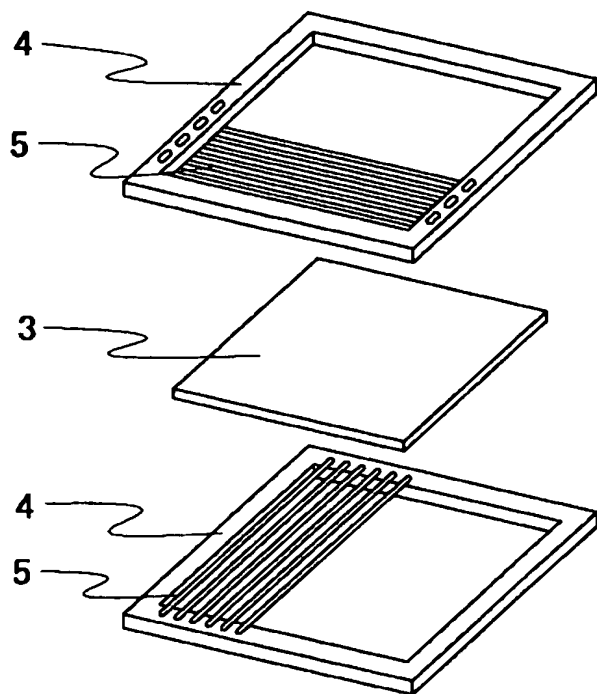




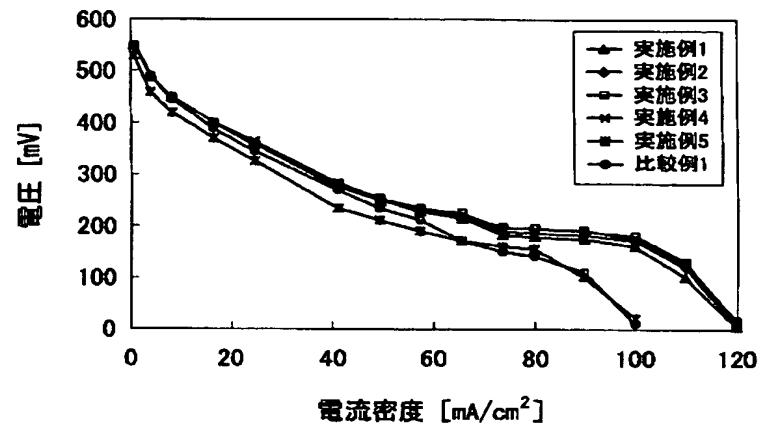
【図 3】



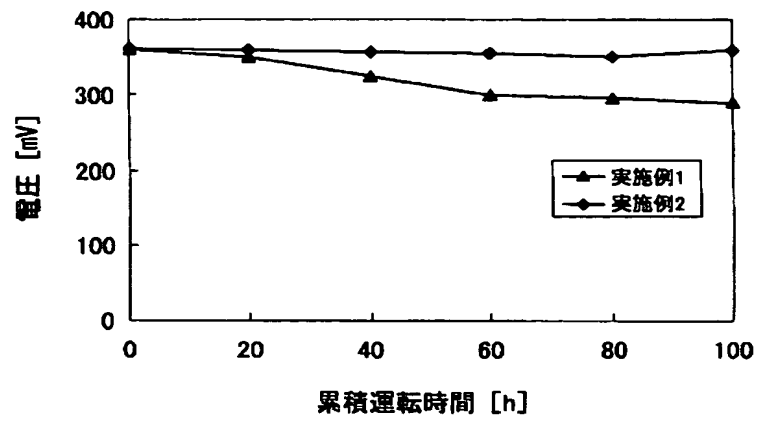
【図 4】



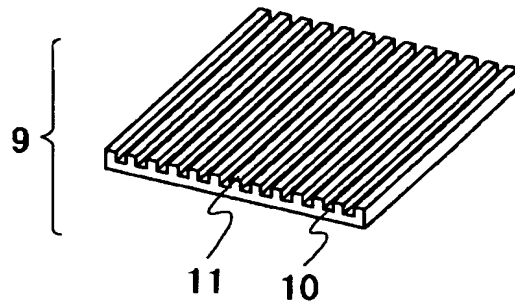
【図 5】



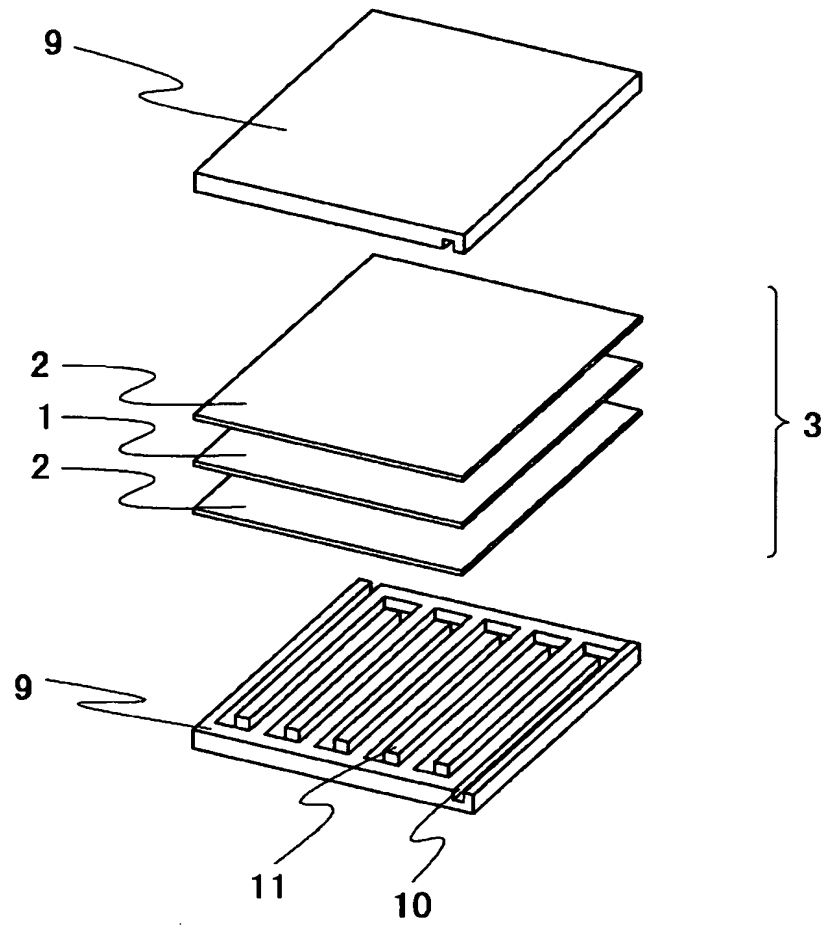
【図 6】



【図 7】



【図 8】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電解質膜電極接合体に圧力を均等に加えることで、燃料、酸素を効率よく供給でき、生成物も速やかに排出され、かつ低コストで製作可能な固体高分子型燃料電池セルと、それを用いた燃料電池を提供すること。

【解決手段】 電解質膜電極接合体 3 を、枠形状の絶縁性の支持体 4 に張った、導電性線材 5 により挟み、締めつけ固定する。このような構成とすることで、電解質膜電極接合体 3 に必要以上の圧力が加わる部分が少なくなるので、効率の高い反応物及び生成物の供給排出が可能となる。また、前記導電性線材 5 が集電体としても機能し、従来使用されていた、複雑な形状のセパレータが不要となることなどから、製造コスト低減が可能となる。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 1 0 9 9 9 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 1 3 4 2 5 7 ]

1. 変更年月日 2 0 0 2 年 4 月 1 日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 宮城県仙台市太白区郡山 6 丁目 7 番 1 号  
氏 名 エヌイーシートーキン株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 7 月 9 日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 宮城県仙台市太白区郡山 6 丁目 7 番 1 号  
氏 名 N E C トーキン株式会社